



(51) 国際特許分類 H01M 10/40, 6/06, 6/14, 6/18, 10/30, 2/16, 2/18	A1	(11) 国際公開番号 WO99/36981 (43) 国際公開日 1999年7月22日(22.07.99)
(21) 国際出願番号 PCT/JP98/00152 (22) 国際出願日 1998年1月19日(19.01.98) (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 三菱電機株式会社 (MITSUBISHI DENKI KABUSHIKI KAISHA)[JP/JP] 〒100 東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 Tokyo, (JP) (72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてののみ) 相原 茂(AIHARA, Shigeru)[JP/JP] 竹村大吾(TAKEMURA, Daigo)[JP/JP] 塩田 久(SHIOTA, Hisashi)[JP/JP] 荒金 淳(ARAGANE, Jun)[JP/JP] 漆畑広明(URUSHIBATA, Hiroaki)[JP/JP] 吉田育弘(YOSHIDA, Yasuhiro)[JP/JP] 濱野浩司(HAMANO, Kouji)[JP/JP] 村井道雄(MURAI, Michio)[JP/JP] 犬塚隆之(INUZUKA, Takayuki)[JP/JP] 〒100 東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 三菱電機株式会社内 Tokyo, (JP)	(74) 代理人 弁理士 宮田金雄, 外(MIYATA, Kaneo et al.) 〒100 東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 三菱電機株式会社内 Tokyo, (JP) (81) 指定国 CN, JP, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). 添付公開書類 国際調査報告書	
<p>(54)Title: BATTERY</p> <p>(54)発明の名称 電池</p> <p>(57) Abstract</p> <p>A conventional battery needs to use a rigid armor can for maintaining electric connection between electrodes and therefore cannot be miniaturized. Also, in a conventional battery in which an electrode and a separator are joined with each other by an adhesive resin, the adhesive strength and the battery property exhibit conflicting behaviors. To solve these problems, a battery which is thin and light-weight without using an armor can and is excellent in both battery property and adhesive strength is provided. A positive electrode and a negative electrode, and a separator are joined with each other by an adhesive resin layer having at least one adhesive resin layer containing a filler. Thus, the adhesive resin layer of porosity is obtained and pores in the porous adhesive resin layer are filled with an electrolyte solution, thereby having sufficient ionic conductivity. Thus, the battery property is improved and the adhesive strength is maintained.</p> <div style="text-align: center;"> </div> <p>a ... volume of pore formed by filler b ... volume of pore c ... volume of adhesive resin d ... volume of filler e ... volume of adhesive resin layer</p>		

(57)要約

従来の電池においては、電極間の電氣的接続を維持するために強固な外装缶を用いなければならず、小型化できないという問題があった。また、各電極とセパレータとを接着性樹脂により接合するものでは、接着強度と電池特性は相反する挙動を示した。この問題を解決するため、外装缶を用いないで薄型、軽量で、かつ電池特性と接着強度の両方に優れた電池を得ることを目的とする。

正極および負極とセパレータとを、フィラーを含む接着性樹脂層を少なくとも1層備えた接着性樹脂層により接合させることによって、接着性樹脂層に多孔性をもたせ、多孔性接着性樹脂層の空孔が電解液で満たされ十分なイオン伝導性を有するようにして、電池特性を向上させ、かつ接着強度を維持する。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン	SG	シンガポール
AL	アルバニア	FI	フィンランド	LK	スリ・ランカ	SI	スロヴェニア
AM	アルメニア	FR	フランス	LR	リベリア	SK	スロヴァキア
AT	オーストリア	GA	ガボン	LS	レソト	SL	シエラ・レオネ
AU	オーストラリア	GB	英国	LT	リトアニア	SN	セネガル
AZ	アゼルバイジャン	GD	グレナダ	LU	ルクセンブルグ	SZ	スワジランド
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	TD	チャード
BB	バルバドス	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BE	ベルギー	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BF	ブルキナ・ファソ	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BG	ブルガリア	GW	ギニア・ビサウ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア共和国	TR	トルコ
BBY	ベナン	GR	ギリシャ			TU	トリニダード・トバゴ
BR	ブラジル	HR	クロアチア	ML	マリ	UA	ウクライナ
BS	ベラルーシ	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	UG	ウガンダ
CA	カナダ	ID	インドネシア	MR	モーリタニア	US	米国
CC	中央アフリカ	IE	アイルランド	MW	マラウイ	UZ	ウズベキスタン
CG	コンゴ	IL	イスラエル	MX	メキシコ	VN	ヴェトナム
CH	スイス	IN	インド	NE	ニジェール	YU	ユーゴスラビア
CI	コートジボワール	IS	アイスランド	NL	オランダ	ZA	南アフリカ共和国
CM	カメルーン	IT	イタリア	NO	ノルウェー	ZW	ジンバブエ
CN	中国	JP	日本	NZ	ニュージーランド		
CU	キューバ	KE	ケニア	PL	ポーランド		
CY	キプロス	KG	キルギスタン	PT	ポルトガル		
CZ	チェコ	KP	北朝鮮	RO	ルーマニア		
DE	ドイツ	KR	韓国	RU	ロシア		
DK	デンマーク	KZ	カザフスタン	SD	スーダン		
EE	エストニア	LC	セントルシア	SE	スウェーデン		

明 細 書

電池

5 技術分野

この発明は、電池に関するものである。さらに詳しくは、軽量でかつ薄型が可能な電池で、高電流密度において放電電流が大きく、かつサイクル特性の良い電池の構成に関するものである。

10 背景技術

電池は以前より様々な装置の主電源やバックアップ電源として用いられており、特に近年では携帯電話や携帯用パーソナルコンピューターなどの携帯用電子機器の発達に伴い、需要が伸びている。電池は用途に応じて一次電池、二次電池が使用されており、特に利便性の高い二次電池はリチウムイオン二次電池、ニッケル水素電池などの高特性の電池が注目を浴びている。以下、携帯用電子機器用として急速に需要が増加しているリチウムイオン二次電池を例にとり、本発明を説明する。

従来リチウムイオン二次電池は正極及び負極との間に絶縁及び電解質保持の機能を持つセパレータを配置して、これらを円筒状に巻回したり、短冊状のものを順次積層したものを金属製の缶に収納して、その缶による圧力により正極及びセパレータ及び負極を密着させて、電極とセパレータ間の接触を保持していた。

しかし、金属製の缶に電極体を収納することにより電氣的接触は保たれるが、缶が金属製であるために、電池自体の重量が増加してしまう難点があった。また、金属製の缶を製造する上で、薄型の缶を製造することが困難であるという問題点もあった。このため、小型携帯機器等に搭

載する目的において、薄型にできないことは電池に対する要求に対応できないことになり重要な課題となっていた。

この問題に対して、イオン伝導層にリチウムイオン伝導性ポリマーを用い、リチウム化合物を含む接着層により、上記イオン伝導層に正極及び負極を接合するものが米国特許 5, 437, 692 号に開示されている。また、本発明者等は、正極及び負極とセパレータとを接着性樹脂を用いて予め接合させることにより金属製の剛性のある缶を必要としない電池の構造及び製造法を特願平 8-338240 号明細書に提案している。

10 正極及び負極とセパレータとを接着性樹脂により接合することにより、外的な圧力を加えることなく、正極とセパレータと負極とを電氣的な接触を保持させることはできるようになった。しかし、接着性樹脂は本来絶縁性であるため、正極とセパレータと負極との界面に存在すると、電氣的な流れ、すなわちイオン伝導を遮断してしまう傾向にあった。

15 正極及び負極とセパレータとを接着性樹脂により接合する場合、それぞれの界面に接着性樹脂の量が多ければ多いほど接着強度は増加する傾向にある。しかし、接着性樹脂の量が多いほど、電池特性が悪くなる傾向にあり、接着強度と電池特性は相反する挙動を示した。接着性樹脂の量が増加するほど界面を接着性樹脂が点状ではなく膜状に覆ってしまう

20 ため、接着面は増加する傾向にある。このため接着強度は増すが、電極間を絶縁膜が覆うことにより、電極間を行き来するイオンの伝導パスが減少してしまうため、電池特性は悪化する結果となったと考えられる。

また、電池特性を上げるため、溶液型接着剤の接着性樹脂成分濃度を減らして接合させた場合、接着性樹脂溶液の粘度が下がるため、多孔質である電極側に接着性樹脂溶液が吸い込まれてしまい、接着強度が低いばかりか接着さえしない状況となった。このため、接着強度を維持しつつ、

電池特性を向上させることが重要な課題となっていた。

また、電極表面はプレスにより平滑化されている。しかし、数ミクロン程度の凹凸は存在し、局部的にセバレータと電極との界面が遊離した部分が存在する。この部分は電解質含浸量、電池の使用状態により本来含浸されるべき電解質が枯渇し、電池内部抵抗の増大、電池特性の低下につながっていた。

この発明は上記のような問題点を解消するためになされたものであり、接着強度を維持しつつ、電池特性を向上させることが可能な軽量、薄型の電池を得ることを目的とする。

10

発明の開示

この発明に係る第1の電池は、電極活物質を有する正極及び負極と、電解質を保持するセバレータと、このセバレータに上記正極及び負極を接合する接着性樹脂層とを有する電池体を備え、上記接着性樹脂層が、少なくとも1層からなるとともにフィラーを含むものである。

これによれば、フィラーを添加することによって接着性樹脂層に多孔性を持たせることが可能となり、この細孔に電解質と接着性樹脂溶液が保持されるので、接着強度を維持しつつ、良好な電池特性が得られる。

この発明に係る第2の電池は、上記第1の電池において、電解質がリチウムイオンを含む有機電解質であるものである。

これによれば、軽量化、薄型化が必要とされるリチウムイオン二次電池において、高性能でかつコンパクトな電池が得られるようになる。

この発明に係る第3の電池は、上記第1の電池において、フィラーの平均径が、正極及び負極が有する電極活物質の粒子径以下であるものである。

これによれば、接着性樹脂溶液が接着性樹脂層に保持され、必要とす

る接着強度が得られる。

この発明に係る第4の電池は、上記第1の電池において、フィラーの平均径が、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下の範囲であるものである。

これによれば、接着性樹脂溶液に適度な増粘効果を与え、なおかつ接着性樹脂層を多孔質化できるので、接着強度を維持しつつ、良好な電池特性が得られる。

この発明に係る第5の電池は、上記第1の電池において、接着性樹脂層の単位体積あたりの接着性樹脂体積比率とフィラー体積比率の和が、1未満であるものである。

これによれば、形成された接着性樹脂層の多孔性を保持することが可能となる。

この発明に係る第6の電池は、上記第1の電池において、接着性樹脂層の単位体積あたりの接着性樹脂体積比率とフィラー体積比率の和が、0.2以上0.8以下であるものである。

これによれば、多孔質接着性樹脂の空孔が電解質で満たされ、十分なイオン伝導性が得られるようになる。

この発明に係る第7の電池は、上記第1の電池において、フィラーの材質が、不導体、または半導体の少なくとも1つを含むものである。

これによれば、接着性樹脂層に多孔性を持たせることが可能となり、接着強度を維持しつつ、良好な電池特性が得られる。

この発明に係る第8の電池は、上記第1の電池において、接着性樹脂層が、導電性のフィラーを含む層と、不導体、または半導体の少なくとも1つを含む層とを有するものである。

これによれば、導電性のフィラーを含む層によって電池内部抵抗を低減することができる。

この発明に係る第9の電池は、上記第1の電池において、接着性樹脂

層が、正極と負極とセパレータの凹凸により上記各電極と上記セパレータとの対向面に形成される空間を埋め込むように構成したものである。

これによれば、接着強度が増加すると共に、電解質欠乏による電池特性の低下を防止できる効果がある。

- 5 この発明に係る第10の電池は、上記第1の電池において、電池体が、正極とセパレータと負極とが各々単層からなる電極体を複数個積層した積層体であるものである。

- この発明に係る第11の電池は、上記第10の電池において、積層体が、正極と負極を、複数のセパレータ間に交互に配置することにより形成されたものである。
- 10

 この発明に係る第12の電池は、上記第10の電池において、積層体が、正極と負極を、巻き上げたセパレータ間に交互に配置することにより形成されたものである。

- この発明に係る第13の電池は、上記第10の電池において、積層体が、正極と負極を、折り畳んだセパレータ間に交互に配置することにより形成されたものである。
- 15

 これら第10～13の電池によれば、高性能で、かつ電池容量が大きな積層電極型電池が得られる効果がある。

20 図面の簡単な説明

- 第1図は本発明の電池における接着性樹脂層の体積割合を示す説明図であり、第2図は本発明の電池における電極とセパレータとの界面に形成される空間を示す断面構成図であり、第3図はP V D F樹脂にアルミナフィラーを添加する前と後の放電容量の変化を示す図であり、第4図
- 25 はP V A樹脂にアルミナフィラーを添加する前と後の放電容量の変化を示す図であり、第5図は添加したアルミナフィラーの平均径を変化させ

たときのピール強度と放電容量の関係を示す図であり、第6図は接着性樹脂層の空間体積％に対するピール強度と放電容量の関係を示す図であり、第7図は接着性樹脂層の厚みに対するピール強度と放電容量の関係を示す図である。

5

発明を実施するための最良の形態

以下に、本発明の実施の形態を図に基づいて説明する。

正極及び負極とセパレータとを接合させるために接着性樹脂を用いる場合、接着強度を上げるために接着性樹脂の量を多くするほど、イオンの
10 導電性を阻害し、電池特性を悪くしている。これは接着性樹脂層が膜状に形成されるため、イオンが移動する経路を塞いでしまうためである。このため、この接着性樹脂が膜状でなく多孔質に存在すれば問題は解決される。本発明は、接着性樹脂の中にフィラー（充填材）を添加することにより、接着性樹脂層に多孔性を持たせたものである。

15 即ち、フィラーを含まない接着性樹脂溶液を電極またはセパレータに塗布し接着すると、特に電極が多孔質なため、接着性樹脂溶液が吸収されてしまう。接着性樹脂溶液にフィラーを混合すると、フィラーによって接着性樹脂自体が多孔質構造を持ち、この細孔に接着性樹脂溶液が保持され、電極への接着性樹脂溶液の吸収を防げるので、接着界面に接着
20 性樹脂溶液を保持できる。また、この効果のため接着性樹脂溶液の粘度も上昇し、接着剤の保持性が更に向上する。

添加するフィラーの平均径としては、電極活物質の粒径以下で、好ましくは1 μm 以下が望ましい。平均粒径が1 μm 以上になると、このサイズのフィラーが作り出す細孔径が電極の細孔径にほぼ近くなってくる
25 ため、電解質溶液を保持する能力が下がってくる。電極活物質粒径以上になると電解質保持能力がなくなってしまうため、電池特性が低下し、

フィラー添加の効果がなくなってしまう。また、平均径が大きくなればなるほど、フィラーの沈降速度が速くなるため、接着性樹脂溶液のハンドリング性が格段に悪くなる。1 μm 以下の範囲であれば接着性樹脂溶液に適度な増粘効果を与え、なおかつ接着性樹脂層を多孔質化でき、接着性樹脂溶液と電解質溶液を電極とセパレータ界面に保持することができる。

なお、上記フィラーの粒径はフィラーの大部分を構成する粒子に対して該当し、この範囲以外の粒子のものが含まれていても問題はない。

溶剤型接着性樹脂では接着性樹脂溶液はフィラー、接着性樹脂、溶剤によって構成される。溶剤は乾燥によって除去されるので、接着性樹脂層はフィラー、接着性樹脂と溶剤の乾燥によって生じた空孔によって構成される。この様子は第1図のように示される。

この図からわかるようにフィラーにより形成される空孔体積は、接着性樹脂体積と溶剤の乾燥によって生じた空孔体積によって構成されている。したがって、フィラーにより形成される空孔体積のすべてを接着性樹脂で埋めてしまうと接着性樹脂層の多孔度が維持できなくなり、接着性樹脂層は絶縁層になってしまう。よって、接着性樹脂層の単位体積あたりの接着性樹脂体積比とフィラー体積比の和は1未満でなければならない。

接着性樹脂層の多孔性を保持するためには上記のように接着性樹脂層単位体積に対して接着性樹脂体積比とフィラー体積比の和が1未満の条件が必要であるが、多孔質接着性樹脂の空孔が電解液で満たされ十分なイオン伝導性を有するためには接着性樹脂層が使用されるセパレータと同程度の空孔体積を有することが望ましいので、接着性樹脂層単位体積に対して接着性樹脂体積比とフィラー体積比の和が0.2以上0.8以下（換言すれば、接着性樹脂層に対する空孔体積分率が20%～80%）であることが好ましい。

0%)である必要がある。

フィラーの材質は上記平均径が可能な材質であれば特に制約はしないが、 Al_2O_3 、 SiO_2 、 ZrO_2 、 $LiAlO_2$ 等の酸化物や、 SiC 、 B_4C 、 ZrC 等の炭化物や、 SiN 、 BN 、 TiN 等の窒化物等に代
5 表される無機物は電解質の中でも安定であり、フィラーを含む接着性樹脂が電極間をつなぐように存在しても導電性が低いので短絡を引き起こすことがない。

ポリオレフィン系樹脂等のポリマーは導電性が低く、更に比重が小さいので、無機フィラーや金属フィラーに比較すると、重量増加を少なく
10 できる。

$LiPF_6$ 、 $LiClO_4$ 等の無機塩においても、電解液に溶けない、もしくは溶け残ったものはフィラーとして微細孔を作り出すことができ、電解液に溶解する場合でも、溶解した後の接着性樹脂層には細孔が存在するので、接着性樹脂層のポロシティを大きくすることが可能になる。
15 炭素、金属等の導電性フィラーを用いた場合は、接着性樹脂層に導電性を与えることができる。よって、接着性樹脂が電極の空隙に入り込んだ場合でも、接着性樹脂の層は導電性を有しているので、電子伝導は阻害されない。しかし、炭素などの導電性材料を用いると、短絡を防止するための工夫が必要になる。たとえば、導電性材料を含む接着性樹脂層
20 と無機物を含む接着性樹脂層をそれぞれ電極側、セパレータ側に設けた2層接着性樹脂層として電極とセパレータを接合することにより、短絡は防止できる。

電極表面とセパレータ界面に存在する空間をフィラーを含む接着性樹脂を用いて埋めることにより接着強度が増加すると共に電解質欠乏によ
25 る電池特性の低下を防止できる。これは第2図に示すように、電極には数 μm 程度の凹凸は少なからず存在するので、この隙間を埋めるように

存在することが望ましい。接着性樹脂層の抵抗による放電容量の低下を50%まで許容するとすれば、接着性樹脂層の厚みは50 μ m以下であることが望ましい。好ましくは放電容量の低下を極力少なくするために、接着性樹脂層の厚みとしては10 μ m以下であることが望ましい。

- 5 接着性樹脂に添加するフィラーの形状については特に限定はしないが、球形状、楕円状、ファイバー状、鱗片状等が挙げられる。球形状であれば、充填密度が上げられるので、接着性樹脂層を薄くすることができる。楕円状、ファイバー状、鱗片状であれば比表面積を大きく取ることができるので、接着性樹脂層の空孔体積を多く取ることができる。
- 10 接着性樹脂の種類には特に限定しないが、電池材料の中に存在しても、電解質や電極構成材に侵されることなく、かつ接着性を維持できる材料であることが望まれる。特に溶剤型接着性樹脂においては、接着性樹脂層を多孔質化しやすいため、より効果が得られやすい。特にリチウムイオン二次電池においては有機電解質なので、ポリフッ化ビニリデン
- 15 (PVDF) に代表されるフッ素系樹脂やポリビニールアルコールを代表とする分子構造内にポリビニールアルコールを含む高分子等が望ましい。

接着性樹脂の塗布方法としては特に限定しないが、目的の厚み、塗布形態に合った方法が望ましい。塗布方法として例を挙げるとスクリーン

- 20 印刷法、バーコーター法、ロールコーター法、グラビア印刷法、ドクターブレード法等が挙げられる。

- 本発明は電池の構造について特に限定はしないが、正極及び負極と、セパレータと、このセパレータに上記正極及び負極を接合する接着性樹脂層とを有する電池体を備えた電池に適用される。よって、電池体としては、正極とセパレータと負極とが各々単層からなる電極体でも構わないし、上記電極体を複数個積層した積層体からなる電池体にも適用でき
- 25

る。このような積層体からなる電池体を備えた電池に適用すれば、高性能で、かつ電池容量の大きなものが得られる。

また、上記積層体を形成するために、切り離した複数の正極・セパレータ・負極を積層しても良いし、連続した 1 組あるいは複数組の正極・セパレータ・負極を巻いたり、折り畳んだりしても良い。

本発明では特にリチウム二次電池において効果が大きいが、特に限定されるものではなく、例えばリチウム一次電池、マンガンー亜鉛電池、銀ー亜鉛電池のような一次電池、ニッケルーカドミウム電池、ニッケルー亜鉛電池、ニッケルー水素電池、ポリマー電池、カーボン二次電池のような二次電池等のような電池でも良い。

以下、実施例により本発明の詳細を説明するが、勿論これらにより本発明が限定されるものではない。

実施例 1.

(電極体の作成)

アルミニウム箔基材の上に平均粒径 $10\mu\text{m}$ の LiCoO_2 (日本化学工業製) を 91 重量部と黒鉛粉末 (ロンザ製) を 6 重量部とポリフッ化ビニリデン (呉羽化学製) を 3 重量部とから構成されている正極活物質層を平均膜厚 $80\mu\text{m}$ 塗布して正極を作成した。銅基材の上に平均粒径 $8\mu\text{m}$ のメソカーボンマイクロビーズ (大阪ガス製) を 90 重量部とポリフッ化ビニリデンを 10 重量部とから構成されている負極活物質層を平均膜厚 $80\mu\text{m}$ 塗布して負極を作成した。これら電極とポリプロピレン・ポリエチレン・ポリプロピレン三層セパレータ (ヘキストセラニーズ製) とを接合する接着性樹脂溶剤として、ポリフッ化ビニリデン (エルファトケムジャパン製) を 10 重量%と平均径 $0.01\mu\text{m}$ のアルミナ粉末 (デグサ製) を 10 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを作成した。正極を $50\text{mm} \times 50\text{mm}$ 、負極を 55mm

m×55mm、セパレータを60mm×60mmに切り出し、セパレータの両面に300メッシュのスクリーン印刷機により接着性樹脂溶剤を塗布して正極及び負極とをセパレータの両側に接合した。これを乾燥機にて80℃、1時間乾燥させて単層の電極体とした。

5 (電極体の評価)

(1) 接着強度(ピール強度)の測定

作成した電極体の負極/セパレータ間の接着強度を180度ピール試験法により測定した。

(2) 電池特性の測定

- 10 作成した電極体の正極、負極ともに集電端子をスポット溶接にて取り付け、これをアルミラミネートシートより作成した袋に入れて、電解液を入れて封口して、電池とした。この電池を1Cにて、充放電させて、電池特性としてこのときの放電容量を測定した。

比較例1.

- 15 実施例1において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデン(PVDF)10重量%をN-メチルピロリドン(NMP)に溶解させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例2.

- 20 実施例1において接着性樹脂溶液としてポリビニルアルコールを2重量%と平均径0.01μmのアルミナ粉末を5重量%とをN-メチルピロリドンに溶解させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

比較例2.

- 25 実施例2において接着性樹脂溶液としてポリビニルアルコール2重量%をN-メチルピロリドンに溶解させたものを使用した以外は全く同

様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 3.

実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.1 μm のアルミナ粉末を 10 重量%とを N-メチル
5 ピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 4.

実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 1 μm のアルミナ粉末を 10 重量%とを N-メチルピ
10 リドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 5.

実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.007 μm のシリカ粉末を 10 重量%とを N-メチ
15 ルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

比較例 3.

実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 10 μm のアルミナ粉末を 10 重量%とを N-メチルピ
20 ロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 6.

実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.01 μm のアルミナ粉末を 5 重量%とを N-メチル
25 ピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 7.

- 実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 5 重量%と平均径 0.01 μm のアルミナ粉末を 25 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、
- 5 電池を組み立てて、評価を行った。

比較例 4.

- 実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.01 μm のアルミナ粉末を 1 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、
- 10 電池を組み立てて、評価を行った。

比較例 5.

- 実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 3 重量%と平均径 0.01 μm のアルミナ粉末を 30 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、
- 15 電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 8.

- 実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.01 μm のアルミナ粉末を 10 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用し、接着性樹脂溶液塗布用スクリーンのメッシュとして 250 メッシュを用いた以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。
- 20

実施例 9.

- 実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.01 μm のアルミナ粉末を 1.0 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用し、接着性樹脂溶液塗布用スクリーンのメッシュとして 200 メッシュを用いた以外は全く同様にし
- 25

て電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 10.

実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.01 μm のアルミナ粉末を 10 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用し、接着性樹脂溶液塗布用スクリーンのメッシュとして 100 メッシュを用いた以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

比較例 6.

実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.01 μm のアルミナ粉末を 10 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用し、接着性樹脂溶液塗布用スクリーンのメッシュとして 50 メッシュを用いて 2 回塗りした以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 11.

実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.01 μm のシリカ粉末（アエロジル社製）を 10 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 12.

実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.5 μm の炭化ケイ素粉末（セイミ製）を 30 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 13.

実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.5 μm の炭化ホウ素粉末（セイミ製）を 30 重量%

とをN-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 14.

5 実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.5 μm の窒化ケイ素粉末（セイミ製）を 30 重量%とをN-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 15.

10 実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.5 μm のポリメタクリル酸メチル（PMMA）粉末を 5 重量%とをN-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 16.

15 実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.5 μm の鉄粉末を 20 重量%とをN-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 17.

20 実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 1 μm のカーボン粉末（大阪ガス製）を 50 重量%とをN-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 18.

25 実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.01 μm のアルミナ粉末を 9 重量%と平均径 1 μm のアルミナ粉末を 1 重量%とをN-メチルピロリドンに溶解分散させた

ものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 19.

- 5 実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.01 μm のアルミナ粉末を 5 重量%と平均径 0.01 μm のシリカ粉末を 5 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 20.

- 10 実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.01 μm のアルミナ粉末を 9 重量%と平均径 0.5 μm のシリカ粉末を 1 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

15 実施例 21.

- 実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.01 μm のアルミナ粉末を 9 重量%と平均径 0.5 μm のポリメタクリル酸メチル (PMMA) 粉末を 1 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして
20 電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 22.

- 実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.01 μm のアルミナ粉末を 9 重量%と平均径 0.5 μm の鉄粉末を 1 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたもの
25 のを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 23.

実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.01 μm のアルミナ粉末を 9 重量%と平均径 1 μm の炭素粉末を 1 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたもの
5 を使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 24.

実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.01 μm のアルミナ粉末を 9 重量%と平均径 0.5
10 μm のアルミナ粉末を 1 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 25.

実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10
15 重量%と平均径 0.5 μm の炭化ケイ素粉末を 5 重量%と平均径 0.5 μm のポリメタクリル酸メチル粉末を 5 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

実施例 26.

20 実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10 重量%と平均径 0.5 μm の鉄粉末を 5 重量%と平均径 0.5 μm のポリメタクリル酸メチル粉末を 5 重量%とを N-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

25 実施例 27.

実施例 1 において接着性樹脂溶液としてポリフッ化ビニリデンを 10

重量%と平均径 $0.5\mu\text{m}$ の炭素粉末を5重量%と平均径 $0.5\mu\text{m}$ のポリメタクリル酸メチル粉末を5重量%とをN-メチルピロリドンに溶解分散させたものを使用した以外は全く同様にして電極、電池を組み立てて、評価を行った。

5 実施例 28.

実施例 1 と同様に正極及び負極及び接着性樹脂溶剤を作成した後、正極を $50\text{mm}\times 50\text{mm}$ 、負極を $55\text{mm}\times 55\text{mm}$ 、セバレータを $120\text{mm}\times 60\text{mm}$ に切り出した。このセバレータの片面に接着性樹脂溶液をスクリーン印刷機で塗布し、これを半分に折りその中央に負極を挟んで2本ロールのラミネータに通してセバレータ付き負極を作成した。このセバレータ付き負極の一方のセバレータ面に接着性樹脂溶液を塗布し、その上に正極を接着させた。ついで、新たなセバレータ付き負極の一方のセバレータ面に接着性樹脂溶液を塗布し、先に接着した正極の他方の面に接着させた。この工程を6回繰り返し、積層した電池体を構成した後、この電池体を加圧しながら乾燥し、正極及び負極とセバレータを接着した平板状積層構造電池を得た。この電池体を実施例 1 と同様に電池特性を評価した。

実施例 29.

実施例 1 と同様に正極及び負極及び接着性樹脂溶剤を作成した後、正極を $50\text{mm}\times 50\text{mm}$ 、負極を $55\text{mm}\times 55\text{mm}$ 、セバレータを $120\text{mm}\times 60\text{mm}$ に切り出した。このセバレータの片面に接着性樹脂溶液をスクリーン印刷機で塗布し、これを半分に折りその中央に正極を挟んで2本ロールのラミネータに通してセバレータ付き正極を作成した。このセバレータ付き正極の一方のセバレータ面に接着性樹脂溶液を塗布し、その上に負極を接着させた。ついで、新たなセバレータ付き正極の一方のセバレータ面に接着性樹脂溶液を塗布し、先に接着した負極の他

方の面に接着させた。この工程を6回繰り返し、積層した電池体を構成した後、この電池体を加圧しながら乾燥し、正極及び負極とセパレータを接着した平板状積層構造電池を得た。この電池体を実施例1と同様に電池特性を評価した。

5 実施例30.

実施例1と同様に正極及び負極及び接着性樹脂溶剤を作成した後、正極を300mm×50mm、負極を305mm×55mm、セパレータを620mm×60mmに切り出した。このセパレータの片面に接着性樹脂溶液をスクリーン印刷機で塗布し、これを半分に折りその中央に負極を挟んで2本ロールのラミネータに通して帯状のセパレータ付き負極を作成した。帯状のセパレータ付き負極の一方のセパレータ面に接着性樹脂溶液を塗布し、セパレータ付き負極の一端を一定量折り、折り目に正極を挟んだ。引き続いて正極とセパレータ付き負極を重ねあわせてからラミネータを通した。その後、セパレータ付き負極の、先ほど接着性樹脂溶液を塗布した面の反対面に接着性樹脂溶液を塗布し、引き続いて長円状に巻き込んでいった。

巻き上げた長円状の電池体を加圧しながら乾燥し、正極及び負極とセパレータを接着した平板状巻型構造電池を得た。この電池体を実施例1と同様に電池特性を評価した。

20 実施例31.

実施例1と同様に正極及び負極及び接着性樹脂溶剤を作成した後、正極を300mm×50mm、負極を305mm×55mm、セパレータを620mm×60mmに切り出した。このセパレータの片面に接着性樹脂溶液をスクリーン印刷機で塗布し、これを半分に折りその中央に正極を挟んで2本ロールのラミネータに通してセパレータ付き正極を作成した。このセパレータ付き正極の一方のセパレータ面に接着性樹脂溶液

を塗布し、セバレータ付き正極の一端を一定量折り、折り目に負極を挟んだ。引き続いて負極とセバレータ付き正極を重ねあわせてからラミネータを通した。その後、セバレータ付き正極の、先ほど接着性樹脂溶液を塗布した面の反対面に接着性樹脂溶液を塗布し、引き続いて長円状に

5 巻き込んでいった。

巻き上げた長円状の電池体を加圧しながら乾燥し、正極及び負極とセバレータを接着した平板状巻型構造電池を得た。この電池体を実施例 1 と同様に電池特性を評価した。

実施例 3 2 .

- 10 実施例 1 と同様に正極及び負極及び接着性樹脂溶剤を作成した後、正極を 3 0 0 mm×5 0 mm、負極を 3 0 5 mm×5 5 mm、セバレータを 3 1 0 mm×6 0 mmに切り出した。帯状の 2 枚のセバレータを負極の両側に配置し、いずれか一方のセバレータの外側に正極を配置する。負極及び正極の間に位置するセバレータには表裏とも接着性樹脂溶液を
- 15 塗布、もう一方のセバレータには、負極に面する側のみに接着性樹脂溶液を塗布し、正極の一端を一定量先行してラミネータを通し、ついで正極、セバレータ、負極とを重ね合わせながらラミネータに通し帯状の積層物を得た。その後、帯状の積層物のセバレータ面に接着性樹脂溶液を塗布し、飛び出ている正極を折り込み、引き続いて長円状に巻き込んで
- 20 いった。

巻き上げた長円状の電池体を加圧しながら乾燥し、正極及び負極とセバレータを接着した平板状巻型構造電池を得た。この電池体を実施例 1 と同様に電池特性を評価した。

実施例 3 3 .

- 25 実施例 1 と同様に正極及び負極及び接着性樹脂溶剤を作成した後、正極を 3 0 0 mm×5 0 mm、負極を 3 0 5 mm×5 5 mm、セバレータ

を310mm×60mmに切り出した。帯状の2枚のセパレータを正極の両側に配置し、いずれか一方のセパレータの外側に負極を配置する。負極及び正極の間に位置するセパレータには表裏とも接着性樹脂溶液を塗布、もう一方のセパレータには、正極に面する側のみに接着性樹脂溶液を塗布し、負極の一端を一定量先行してラミネータを通し、ついで正極、セパレータ、負極とを重ね合わせながらラミネータに通し帯状の積層物を得た。その後、帯状の積層物のセパレータ面に接着性樹脂溶液を塗布し、飛び出ている負極を折り込み、引き続いて長円状に巻き込んでいった。

- 10 巻き上げた長円状の電池体を加圧しながら乾燥し、正極及び負極とセパレータを接着した平板状巻型構造電池を得た。この電池体を実施例1と同様に電池特性を評価した。

以上、作成した電極及び電池の接着強度測定結果及び1Cにおける充放電の放電容量を表1から表7に示した。表1の接着性樹脂を変えたときの各充放電電流に対する放電容量を示した図を第3図から第4図にまとめた。実施例1及び2と比較例1及び2とを比較することにより、ファイラーを接着性樹脂溶液に添加することにより、放電容量、特に高負荷においての値が向上することがわかる。

表1

項目	接着剤種類				ピール強度 gf/cm	放電容量 mAh(1C)
	樹脂	ファイラー	重量比率	ファイラー粒径		
実施例1	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	50	60
比較例1	PVDF	なし			100	20
実施例2	PVA	アルミナ	2:5	0.01	70	60
比較例2	PVA	なし			100	30

表2にはアルミナファイラーの平均径を変化させたときの結果、および

さらに粒径の小さいシリカフィラーに対する結果を示した。これらの結果を第5図にまとめ、添加するアルミナフィラーの粒径を変化させたときのピール強度と放電容量を示した。粒径が1 μm 以下ではピール強度はやや減少するが、実用上問題はなかった。逆に平均粒径が1 μm より大きくになると、接着性樹脂層の空孔体積が減少するため、放電容量が減少する傾向があることがわかった。

表 2

項目	接着剤種類				ピール強度 gf/cm	放電容量 mAh(1C)
	樹脂	フィラー	重量比率	フィラー-粒径		
10 実施例1	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	50	60
実施例3	PVDF	アルミナ	1:1	0.1	60	55
実施例4	PVDF	アルミナ	1:1	1	65	50
実施例5	PVDF	シリカ	1:1	0.007	45	60
比較例3	PVDF	アルミナ	1:1	10	60	25

15 表3にアルミナフィラーの接着性樹脂に対する比率を変化させたときの結果を示した。この結果を空孔体積分率に対するピール強度と電池容量にまとめたものを第6図に示した。樹脂に対するフィラーの比率を変化させることにより、フィラーが形成する空孔体積中の接着性樹脂割合が変化するので、接着性樹脂層の空孔体積が変化する。この空孔体積分率

20 率が20%以下になると、接着性樹脂層のイオンパスが減少するため、放電容量が明らかに低下する。逆に接着強度は空孔体積分率が増加するほど低下する傾向があり、80%以上になるとフィラーの量が多すぎるため、接着性樹脂の量が減少してしまい、接着強度が極端に下がってしまうことがわかった。

表 3

5

項目	接着剤種類				固形分体積 分率(%)	空孔体積 分率(%)	ピール強度 gf/cm	放電容量 mAh(1C)
	樹脂	フィラー	重量比率	フィラー粒径				
実施例1	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	50	50	70	62
実施例6	PVDF	アルミナ	2:1	0.01	70	30	85	58
実施例7	PVDF	アルミナ	1:5	0.01	30	70	60	65
比較例4	PVDF	アルミナ	10:1	0.01	90	10	100	20
比較例5	PVDF	アルミナ	1:10	0.01	10	90	20	65

表 4 には形成された接着性樹脂層の厚みを変化させたときの結果をまとめた。この厚みに対するピール強度と放電容量の値を第 7 図に示した。塗布厚みが 10 μm 以下では接着性樹脂層が電極とセパレータの凹凸による隙間を埋めているために、放電容量が大きく得られているが、10 μm を越えるとイオンパスが長くなりすぎるため、ここが抵抗になってしまい、徐々に放電容量が低下することがわかる。接着性樹脂層の厚みが約 50 μm になると放電容量の低下がおおよそ 50 % にまで及ぶことがわかる。

表 4

20

項目	接着剤種類				厚み μm	ピール強度 gf/cm	放電容量 mAh(1C)
	樹脂	フィラー	重量比率	フィラー粒径			
実施例1	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	4	50	60
実施例8	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	7	60	58
実施例9	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	10	65	55
実施例10	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	20	70	50
比較例6	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	50	70	30

25 表 5 にはフィラーの材質を変化させたときの結果を示した。これら様々な材質を用いても同様の効果があることが示された。特に、無機化

合物、ポリマーで効果が大きいことが示された。

表 5

項目	接着剤種類				ピール強度 gf/cm	放電容量 mAh(1C)
	樹脂	フィラー	重量比率	フィラー粒径		
5 実施例1	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	50	60
実施例11	PVDF	シリカ	1:1	0.01	50	60
実施例12	PVDF	炭化ケイ素	1:3	0.5	80	50
実施例13	PVDF	炭化ケイ素	1:3	0.5	80	50
実施例14	PVDF	窒化ケイ素	1:3	0.5	80	50
実施例15	PVDF	ポリシリ	2:1	0.5	80	50
10 実施例16	PVDF	鉄	1:2	0.5	80	45
実施例17	PVDF	炭素	1:5	1	50	45

表 6 には 2 種類のフィラーを混合させた場合の結果を示した。このように様々な組み合わせでフィラーを混合させても、同様の効果があることがわかる。特に、導電材を含まない材料で効果が大きいことが示された。

表 6

項目	接着剤種類								ピール 強度 gf/cm	放電 容量 mAh(1C)	
	接着性 樹脂		ファイラー1			ファイラー2					
	材質	重量比率	材質	重量比率	平均径	材質	重量比率	平均径			
5	実施例1	PVDF	1	アルミナ	1	0.01	なし	0	0	50	60
	実施例18	PVDF	1	アルミナ	0.9	0.01	アルミナ	0.1	1	55	55
	実施例19	PVDF	1	アルミナ	0.5	0.01	シリカ	0.5	0.01	50	60
	実施例20	PVDF	1	アルミナ	0.9	0.01	シリカ	0.1	0.5	55	55
	実施例21	PVDF	1	アルミナ	0.9	0.01	PMMA	0.1	0.5	55	55
10	実施例22	PVDF	1	アルミナ	0.9	0.01	鉄	0.1	0.5	55	50
	実施例23	PVDF	1	アルミナ	0.9	0.01	炭素	0.1	1	55	50
	実施例24	PVDF	1	アルミナ	0.9	0.01	炭化ケイ素	0.1	0.5	55	55
	実施例25	PVDF	1	炭化ケイ素	0.5	0.5	PMMA	0.5	0.5	80	55
	実施例26	PVDF	1	PMMA	0.5	0.5	鉄	0.5	0.5	80	45
	実施例27	PVDF	1	PMMA	0.5	0.5	炭素	0.5	1	80	45

表 7 には様々な電池構造における電池特性試験の結果を示した。このように電池構造を変化させても、良好な電池特性が得られることがわかった。とくに、電池体を複数個の電極体を積層した積層体とすることにより、高性能で、かつ電池容量の大きい電池が得られることがわかった。

表 7

項目	接着剤種類				電池構造	放電容量 mAh(1C)
	樹脂	ファイラー	重量比率	ファイラー粒径		
20 実施例1	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	平板状単層電池	60
実施例28	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	平板状積層電池	360
実施例29	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	平板状積層電池	360
実施例30	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	平板状巻型電池	360
実施例31	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	平板状巻型電池	360
実施例32	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	平板状巻型電池	360
25 実施例33	PVDF	アルミナ	1:1	0.01	平板状巻型電池	360

産業上の利用可能性

この発明による電池は、携帯用電子機器の二次電池等に用いられ、電池の性能向上とともに小型・軽量化が可能となる。

請 求 の 範 囲

1. 電極活物質を有する正極及び負極と、電解質を保持するセバレータと、このセバレータに上記正極及び負極を接合する接着性樹脂層とを有する電池体を備え、上記接着性樹脂層が、少なくとも1層からなるとともに5 フィラーを含むことを特徴とする電池。
2. 電解質がリチウムイオンを含む有機電解質であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の電池。
3. フィラーの平均径が、各電極を構成する電極活物質の粒子径以下であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の電池。
- 10 4. フィラーの平均径が、 $1\mu\text{m}$ 以下の範囲であることを特徴とする請求の範囲第3項に記載の電池。
5. 接着性樹脂層の単位体積あたりの接着性樹脂体積比率とフィラー体積比率の和が、1未満であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の電池。
- 15 6. 接着性樹脂層の単位体積あたりの接着性樹脂体積比率とフィラー体積比率の和が、0.2以上0.8以下であることを特徴とする請求の範囲第5項に記載の電池。
7. フィラーの材質は、不導体、または半導体の少なくとも1つを含むことを特徴とする請求の範囲第1項に記載の電池。
- 20 8. 接着性樹脂層は、導電性のフィラーを含む層と、不導体、または半導体の少なくとも1つを含む層とを有することを特徴とする請求の範囲第1項に記載の電池。
9. 接着性樹脂層は、正極と負極とセバレータの凹凸により、上記各電極と上記セバレータとの対向面に形成される空間を埋め込むように構成したことを特徴とする請求の範囲第1項に記載の電池。
- 25 10. 電池体は、正極とセバレータと負極とが各々単層からなる電極体

を複数個積層した積層体であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の電池。

11. 積層体は、正極と負極を、複数のセパレータ間に交互に配置することにより形成されたことを特徴とする請求の範囲第10項に記載の電池。

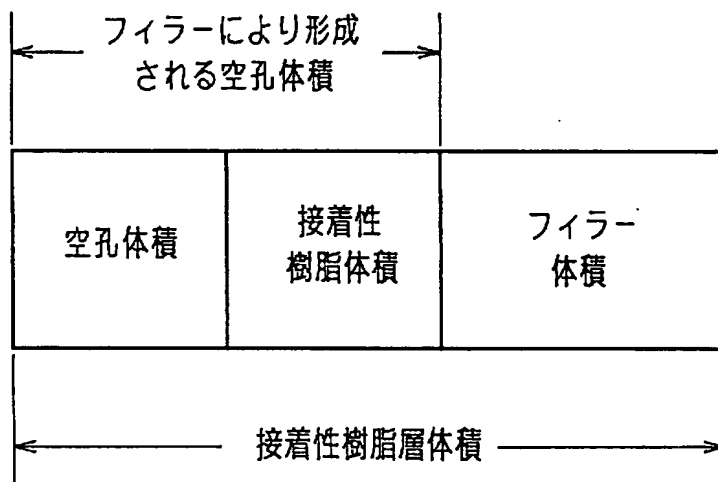
5

12. 積層体は、正極と負極を、巻き上げたセパレータ間に交互に配置することにより形成されたことを特徴とする請求の範囲第10項に記載の電池。

10 13. 積層体は、正極と負極を、折り畳んだセパレータ間に交互に配置することにより形成されたことを特徴とする請求の範囲第10項に記載の電池。

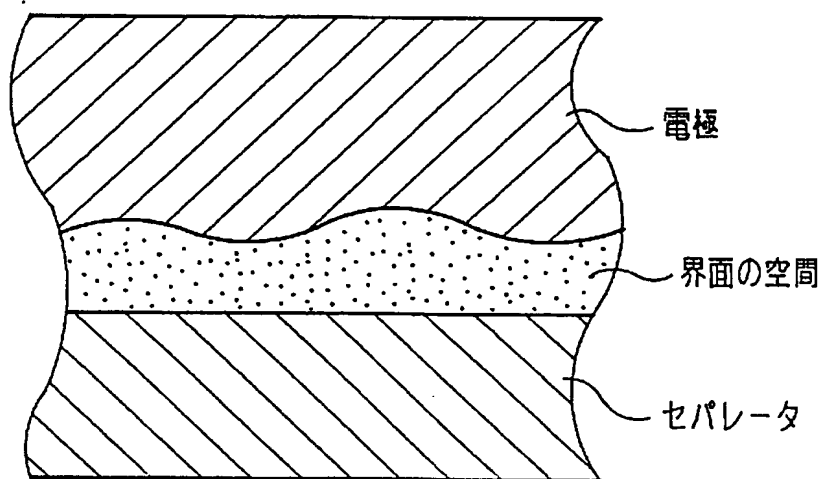
1/7

第 1 図



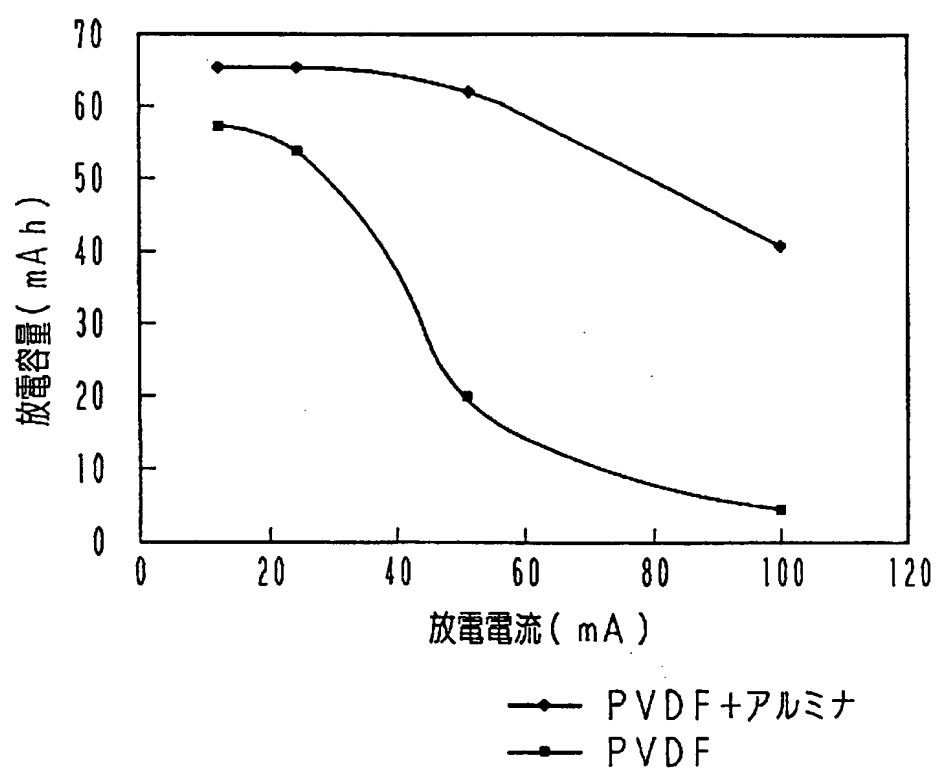
2/7

第 2 図



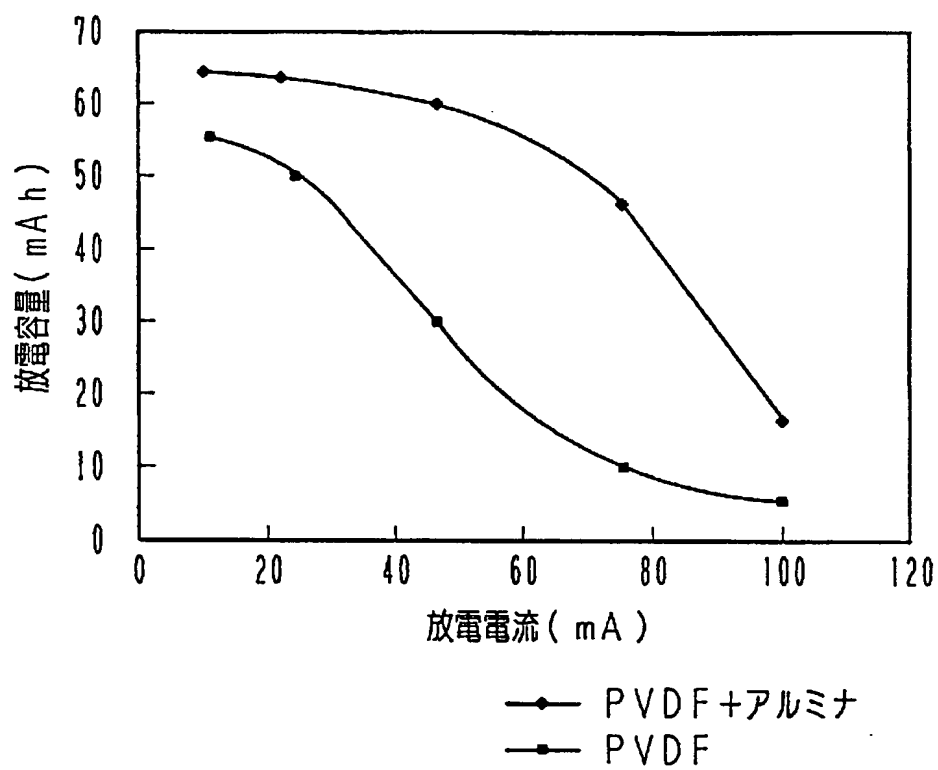
3/7

第 3 図



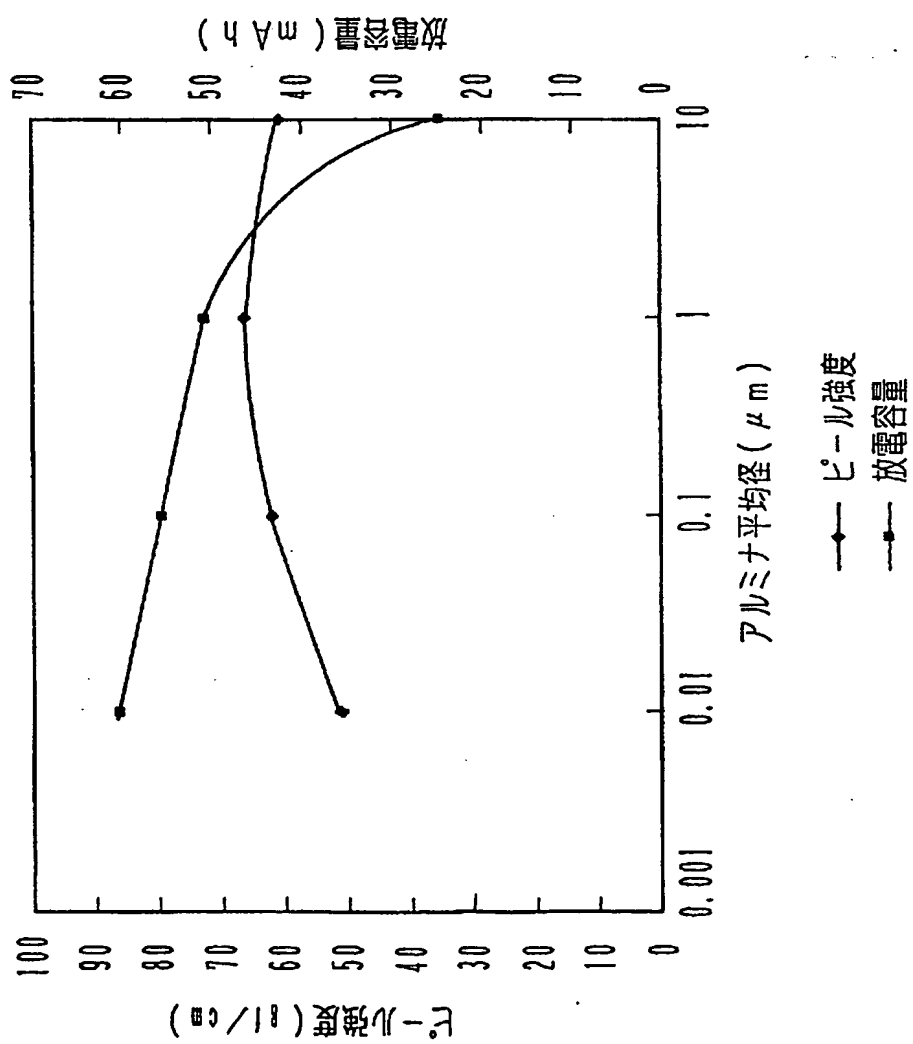
4/7

第 4 図



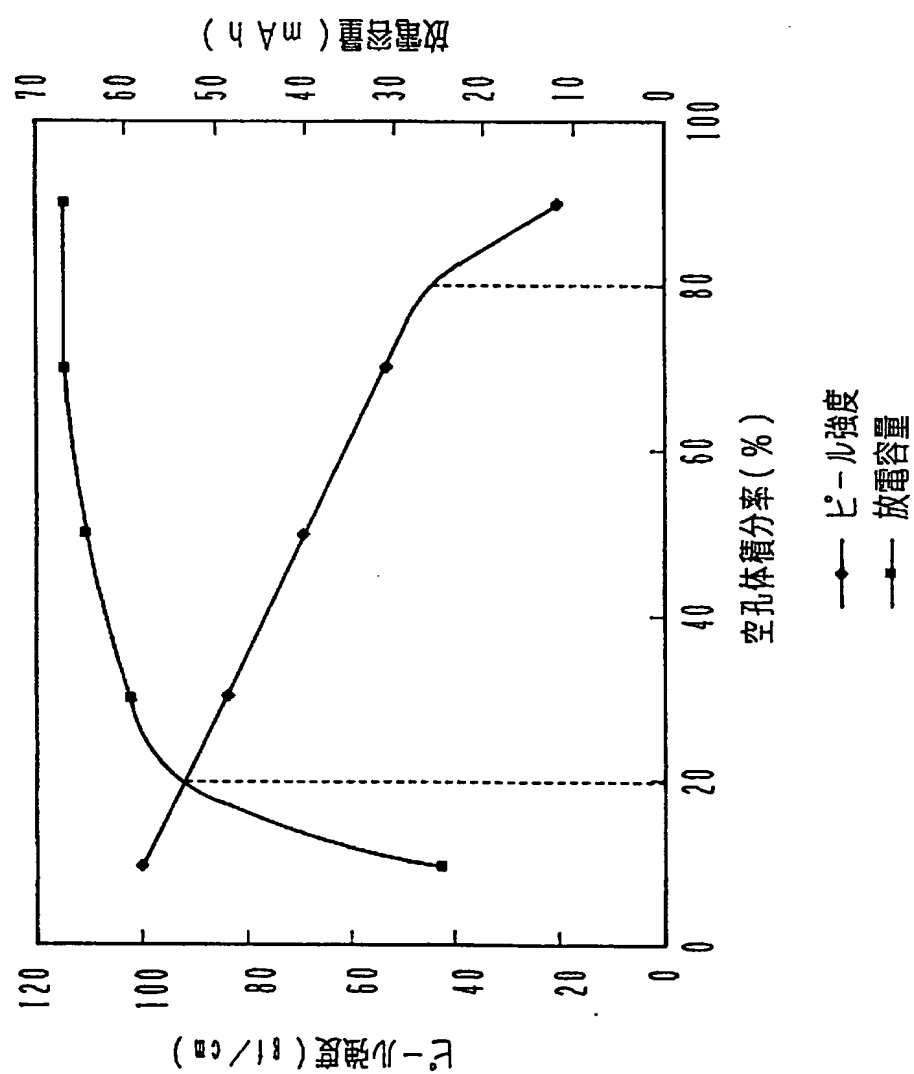
5/7

第 5 図



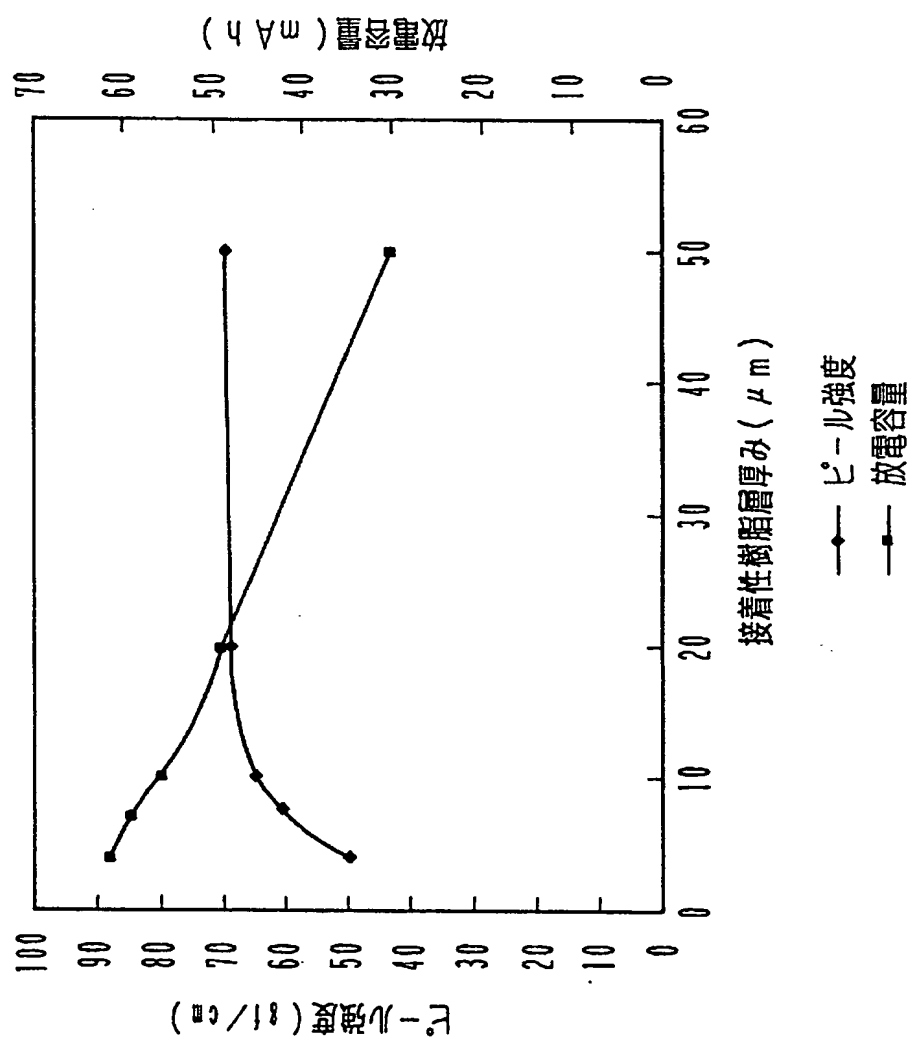
6/7

第 6 図



7/7

第 7 図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP98/00152

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁵ H01M10/40, 6/06, 6/14, 6/18, 10/30, 2/16, 2/18

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁵ H01M10/40, 6/06-6/18, 10/30, 2/16, 2/18

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-1998
 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1998 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-1998

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 62-8471, A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), January 16, 1987 (16. 01. 87) (Family: none)	1, 9
A	JP, 55-41689, A (P.R. Mallory & Co., Inc.), March 24, 1980 (24. 03. 80) & US, 4220693, A	1
A	JP, 9-293518, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), November 11, 1997 (11. 11. 97)	1-13
A	JP, 6-168737, A (Canon Inc.), June 14, 1994 (14. 06. 94) & EP, 600718, A	1-13

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.
 ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

 Date of the actual completion of the international search
 March 20, 1998 (20. 03. 98)

 Date of mailing of the international search report
 March 31, 1998 (31. 03. 98)

 Name and mailing address of the ISA/
 Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP 98/00152

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁸ H01M 10/40, 6/06, 6/14, 6/18, 10/30, 2/16, 2/18

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁸ H01M 10/40, 6/06-6/18, 10/30, 2/16, 2/18

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-1998年
 日本国登録実用新案公報 1994-1998年
 日本国実用新案登録公報 1996-1998年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 62-8471, A (松下電器産業株式会社), 16. 1月. 1987 (16. 01. 87), (ファミリーなし)	1, 9
A	JP, 55-41689, A (ピー・アール・マロリー・アンド・ カンパニー・インコーポレーテッド), 24. 3月. 1980 (24. 03. 80) & US, 4220693, A	1
A	JP, 9-293518, A (旭化成工業株式会社), 11. 11月. 1997 (11. 11. 97)	1-13
A	JP, 6-168737, A (キャノン株式会社), 14. 6月. 1994 (14. 06. 94) & EP, 600718, A	1-13

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

20. 03. 98

国際調査報告の発送日

31.03.98

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

吉水 純子

印

4K 7738

電話番号 03-3581-1101 内線 3436